

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2004年6月24日 (24.06.2004)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2004/052955 A1

- (51) 国際特許分類<sup>7</sup>: C08F 232/06, 8/04, C09J 145/00 (74) 代理人: 大谷 保, 外(OHTANI,Tamotsu et al.); 〒105-0001 東京都港区虎ノ門三丁目2番2号ブリヂストン虎ノ門ビル6階 大谷特許事務所 Tokyo (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2003/015335
- (22) 国際出願日: 2003年12月1日 (01.12.2003) (81) 指定国 (国内): CA, CN, ID, KR, SG, US.
- (25) 国際出願の言語: 日本語 (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ: 特願2002-355482 2002年12月6日 (06.12.2002) JP 添付公開書類:  
— 国際調査報告書
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 出光石油化学株式会社 (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒130-0015 東京都墨田区横綱一丁目6番1号 Tokyo (JP). 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 山根 秀樹 (YAMANANE,Hideki) [JP/JP]; 〒745-0843 山口県周南市新宮町1番1号 Yamaguchi (JP).

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING PETROLEUM RESIN AND HYDROGENATED PETROLEUM RESIN

(54) 発明の名称: 石油樹脂及び水素添加石油樹脂の製造方法

(57) Abstract: A method for producing a petroleum resin, which comprises carrying out a copolymerization reaction in the presence of a cyclopentadiene type compound, a vinyl-substituted aromatic compound containing substantially no high molecular weight polymeric material and a solvent. The method allows the production of a petroleum resin and a hydrogenated petroleum resin which is reduced in the content of a high molecular weight polymeric material and has a narrow molecular weight distribution.

(57) 要約: 本発明は、シクロペンタジエン系化合物と、実質的に高分子量体を含まないビニル置換芳香族化合物及び溶媒の存在下、共重合反応する石油樹脂の製造方法である。本発明によれば、高分子量体が少なく、分子量分布の狭い石油樹脂及び水素添加石油樹脂が得られる。

## 明 細 書

### 石油樹脂及び水素添加石油樹脂の製造方法

#### 技術分野

本発明は、特定のビニル置換芳香族化合物を使用し共重合反応を行なって得られる石油樹脂の製造方法、該石油樹脂を水素添加して得られる水素添加石油樹脂及びその製造方法並びに該水素添加石油樹脂を含有する粘着力の優れたホットメルト接着剤組成物に関するものである。

#### 背景技術

ホットメルト接着剤は、高速塗工性、速硬化性、無溶剤性、バリヤ性、省エネルギー性及び経済性等に優れるため各種分野において利用が拡大している。

一般的なホットメルト接着剤としては、天然ゴム、エチレン-酢酸ビニル共重合体、スチレン-ブタジエンスチレンブロック共重合体及びその水素添加物、スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体及びその水素添加物等のベースポリマーに粘着付与樹脂や可塑剤を配合した組成物等が使用されている。

粘着付与樹脂としては、一般に石油樹脂やクマロン系樹脂、フェノール系樹脂、テルペン樹脂及びロジン系樹脂と呼ばれているもの、並びにそれらの水素添加物が使用されている。

ホットメルト接着剤は、主に、粘着付与樹脂、ベースポリマー及び可塑剤の三成分からなっている。

この内、粘着付与樹脂の性状がホットメルト接着剤の性能を大きく左右する因子の一つである。

しかし、従来の製造法で得られる石油樹脂には、平均分子量数万～数十万の高分子量体が含まれることがあり、粘着力及び保持力等の粘着性能を悪化させることがあった。

このような事実については、本発明者が見出したもので先行技術文献は知られていない。

本発明は、このような状況下で、粘着力及び保持力等の粘着性能に優れた粘着付与樹脂を得ることを目的とするものである。

#### 発明の開示

本発明者は、上記課題を達成すべく鋭意研究を重ねた結果、共重合反応によって得られた石油樹脂中のビニル置換芳香族化合物のある分子量以上の単独重合体含有量が粘着性能と相関性が高いことを見出し、実質的に高分子量体を含まないビニル置換芳香族化合物を原料として使用することにより、高分子量体が少なく、分子量分布の狭い石油樹脂が得られることを見出し、本発明を完成するに至った。

即ち、本発明は、

(1) シクロペンタジエン系化合物と、実質的に高分子量体を含まないビニル置換芳香族化合物を溶媒の存在下、共重合反応する石油樹脂の製造方法

(2) シクロペンタジエン系化合物と、実質的に高分子量体を含まないビニル置換芳香族化合物を溶媒の存在下共重合反応後、水素添加反応を行なう水素添加石油樹脂の製造方法

(3) 上記2に記載の製造方法により得られた、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) で観測される最大分子量が18000以下の水素添加石油樹脂

(4) 上記3に記載の水素添加石油樹脂を含有するホットメルト接着剤組

成物

に関するものである。

#### 発明を実施するための最良の形態

##### (1) 石油樹脂

本発明のシクロペンタジエン系化合物としては、シクロペンタジエン、メチルシクロペンタジエン、エチルシクロペンタジエン及びこれらの二量体並びに共二量体等が挙げられる。

ビニル置換芳香族化合物としては、スチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、 $\beta$ -メチルスチレン、ビニルトルエン、ビニルキシレン、インデン、メチルインデン及びエチルインデン等が挙げられる。

本発明の共重合反応による石油樹脂の製造方法に使用可能な重合溶媒としては、芳香族系溶媒、ナフテン系溶媒、脂肪族炭化水素系溶媒等が挙げられる。

例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン、シクロヘキサン、ジメチルシクロヘキサン、エチルシクロヘキサン等の溶媒が好適に使用できる。

溶媒の使用量としては、シクロペンタジエン系化合物及び／又はジシクロペンタジエン系化合物と、実質的に高分子量体を含まないビニル置換芳香族化合物 100 質量部に対して、50～500 質量部、好ましくは 60～300 質量部である。

本発明の製造方法において、共重合反応の開始時、溶媒は 100℃、好ましくは 150℃以上に加熱しておくことが好ましい。

この加熱された溶媒中に、シクロペンタジエン系化合物及び／又はジシクロペンタジエン系化合物と、実質的に高分子量体を含まないビニル置換芳香族化合物の混合物を分割添加しながら共重合反応を行う。

分割添加は、等分に添加することが好ましい。

本発明のビニル置換芳香族化合物に含まれる高分子量体は、分子量が2万以上の化合物であり、その含有量は300質量ppm以下、好ましくは100質量ppm以下である。

従来、ビニル置換芳香族化合物、例えば、スチレン又はスチレンを含む化学プロセス留分等は、一般的にターシャリー・ブチルカテコール等の重合抑制剤との共存下に保存されるが、保存期間が長くなるにつれ微量ながら重合反応がおこり高分子量体が増加する。適切な保存（遮光管理、温度管理等）がなされない場合、重合反応が加速される。また、スチレンを含む留分によっては、最初から高分子量体が含まれている場合がある。通常の保存状態では、スチレン等のビニル置換芳香族化合物に含まれる高分子量体（再沈殿法で検出される平均分子量は、通常数万～数十万の化合物）は、300質量ppmを超えることもある。

本発明における実質的に高分子量体を含まないビニル置換芳香族化合物は、例えば、高分子量体を含むビニル置換芳香族化合物を蒸留精製等により得ることができる。

シクロペンタジエン系化合物及び／又はジシクロペンタジエン系化合物と、実質的に高分子量体を含まないビニル置換芳香族化合物の混合割合は、特に制限はないが、通常、シクロペンタジエン系化合物及び／又はジシクロペンタジエン系化合物：実質的に高分子量体を含まないビニル置換芳香族化合物が、70：30～20：80、好ましくは60：40～40：60である。

この混合物の分割添加時間は、通常、0.5～5時間、好ましくは1～3時間である。

この共重合反応は、シクロペンタジエン系化合物及び／又はジシクロペンタジエン系化合物と、実質的に高分子量体を含まないビニル置換芳香族化合物の混合物を分割添加し終わった後も引き続いて共重合反応を行なわ

せることが好ましい。

共重合反応条件には、特に制限はないが、通常、反応温度は150～350℃、好ましくは220～300℃、反応圧力は、0～2MPa、好ましくは0～1.5MPa、反応時間は1～10時間、好ましくは1～8時間である。

このようにして得られた共重合反応生成物は、例えば、温度100～300℃、圧力0.133～13.3kPa（1～100mmHg）で1～3時間処理して揮発分（溶媒の他、低分子量体も揮発し得る）を除去すれば、本発明の石油樹脂を得ることができる。

このようにして得られた本発明の石油樹脂は、軟化点が50～120℃、ビニル置換芳香族化合物の含有量が30～90質量%、臭素価が30～90g/100g、数平均分子量が400～1100、最大分子量が3万以下である。

#### （水素添加石油樹脂）

本発明の水素添加石油樹脂は、上記石油樹脂を水素添加反応することにより得ることができる。

石油樹脂の水素添加反応は、ニッケル、パラジウム、コバルト、白金、ロジウム系触媒の存在下、シクロヘキサン、テトラヒドロフラン等の溶媒中、温度120～300℃、好ましくは150～250℃、反応圧力1～6MPa、好ましくは3～6MPa、反応時間1～7時間、好ましくは2～5時間で行うことができる。

本発明の水素添加反応は、芳香環をも水素添加する部分水素添加反応又は完全水素添加反応である。

次に、得られた水素添加生成物を、例えば、温度100～300℃、圧力0.133～13.3kPa（1～100mmHg）で1～3時間処理して揮発分（溶媒の他、低分子量体も揮発し得る）を除去すれば、本発明

の水素添加石油樹脂を得ることができる。

このようにして得られた本発明の水素添加石油樹脂は、軟化点が 90 ～ 160℃、ビニル置換芳香族化合物の含有量が 0 ～ 35 質量%、臭素価が 0 ～ 30 g / 100 g、数平均分子量が 500 ～ 1100、最大分子量が 3 万以下である。

(ホットメルト接着剤組成物)

本発明のホットメルト接着剤組成物は、上記水素添加石油樹脂に、ベースポリマー及び可塑剤等を配合して得ることができる。

ベースポリマーとしては、天然ゴム、エチレン-酢酸ビニル共重合体 (EVA)、非晶性ポリアルファオレフィン、スチレン-ブタジエンスチレンブロック共重合体 (SBS)、スチレン-イソプレンスチレンブロック共重合体 (SIS) 及びこれらのゴム成分を水素添加して得られるスチレン-エチレン-ブチレンスチレンゴム (SEBS)、スチレン-エチレン-プロピレンスチレンゴム (SEPS) 等が挙げられる。

可塑剤としては、例えば、原油を常圧蒸留することにより得られる重油留分を減圧蒸留し、更に、水素化改質、脱ロウ処理等の精製を行なうことにより得られるパラフィン系プロセスオイル、又は、減圧蒸留後、溶剤抽出、水素添加反応及び白土処理を行なうことによって得られるナフテン系プロセスオイル等が挙げられる。

この他、ポリブテン及び液状のポリアルファオレフィン等も挙げることができる。

本発明のホットメルト接着剤組成物の製造方法としては、特に限定されるものではないが、プロペラ式攪拌機、二軸の混練機、ニーダー等を使用して、加熱溶融攪拌又は混練する方法等を使用することができる。

水素添加石油樹脂、ベースポリマー及び可塑剤の配合順序は、特に限定されるものではない。

又、加熱温度も特に限定されないが、通常、120～190℃で行うことができる。

上記三成分の配合量は、要求される物性によって異なるが、水素添加石油樹脂30～70質量%、ベースポリマー15～40質量%及び可塑剤10～40質量%の範囲である。

本発明のホットメルト接着剤組成物には、上記三成分の他に、物性を損なわない範囲で酸化防止剤、ワックス及びフィラー類を添加することもできる。

次に、本発明を実施例により、さらに詳細に説明するが、本発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。

(分析法、物性測定法及びホットメルト接着剤組成物の性能評価法)

(1) ビニル置換芳香族化合物の含有量

ビニル置換芳香族化合物は、赤外分光光度計（吸光度700  $\text{cm}^{-1}$ ）により定量した。

(2) 臭素価

臭素価は、JIS K2605に準拠して測定した。

(3) 軟化点

軟化点は、JIS K2207に準拠して測定した。

(4) 熔融粘度

熔融粘度は、JIS K6862に準拠し、B型粘度計を使用して測定した。

(5) 粘着力

粘着力は、JIS Z0237に準拠して測定した。

(6) 保持力

保持力は、JIS Z0237に準拠して測定した。

(7) ループタック



ループタックは、F I N A Tテスト規格に準拠して測定した。

(8) 曇り点

試験管に試料20gを入れて、透明になるまで加熱する。その後、25℃で攪拌しながら放冷し、曇りが生じ始める温度を曇り点とする。

(9) 恒温クリープ

恒温クリープは、J A I（日本接着剤工業会規格）B法に準拠して測定した。

(10) G P Cの測定法（最大分子量の測定）

カラム：T S KゲルG 2 0 0 H<sub>XL</sub> & G 4 0 0 0 H<sub>XL</sub>

流量：1 m L / m i n

溶離液：T H F

温度：4 0 °C

(11) 高分子量体の測定

J I S - K - 6 7 2 7に準拠し、スチレンにメタノールを混合し、沈殿する高分子量体を透過率との相関で定量した。

実施例1

(スチレンの蒸留)

ガラスビーズを充填した単蒸留装置に、温度40～50℃、圧力1 k P a（7.5 mm H g）以下、還流比1～3の条件で、ターシャリーブチルカテコールを溶解したスチレンをオーバーヘッドより連続的に供給し、留出液として高分子量体を2質量p p m含有するスチレンを得た。

(石油樹脂の製造)

窒素で置換した攪拌機付きの1 L重合反応器に、溶媒としてキシレン332 g {原料モノマー、即ち、シクロペンタジエン（C P D）とジシクロペンタジエン（D C P D）の混合物〔C P D / D C P D = 2 / 8（重量比）〕及びスチレンの混合物100質量部に対し、90質量部}を加え、

260℃まで加熱し、撹拌しながらシクロペンタジエンとジシクロペンタジエンの混合物184gと上記高分子量体を2質量ppm含有するスチレン184gの混合物を180分間にわたって添加した。

その後、引き続き130分間共重合反応を行なった。

反応終了後、共重合反応生成物を取り出し、ロータリーエバポレーターを使用して、温度200℃、圧力1.33kPa（10mmHg）で2時間処理し、未反応モノマーとキシレンを除去し、344gの（ジ）シクロペンタジエンとスチレンの共重合体（石油樹脂）を得た。

この共重合体の性質を第1表に示す。

#### 実施例2（水素添加石油樹脂の製造）

窒素で置換した撹拌機付きの300mL水素化反応器に、溶媒としてシクロヘキサン70g、実施例1で得た共重合体70g、ニッケル触媒（日揮化学株式会社製、N-112）1.5gを採取し、水素圧力4MPa、温度230℃で4時間水素添加反応を行った。

反応終了後、水添反応生成物を取り出し、酸化防止剤（日本チバガイギー（株）製、イルガノックス1010）を4000ppm添加した後、ロータリーエバポレーターを使用して、温度200℃、圧力1.33kPa（15mmHg）で1時間処理し、シクロヘキサンを除去して、70gの（ジ）シクロペンタジエンとスチレンの共重合体水素添加物（水素添加石油樹脂）を得た。

この共重合体水素添加物の性質を第1表に示す。

#### 実施例3（ホットメルト接着剤組成物の製造及び評価）

第2表に示す配合割合にて、実施例2で得られた共重合体水素添加物と、EVA<sub>7</sub>（エチレン／酢酸ビニル共重合体）〔東ソー（株）製、商品名：ウルトラセン720、ウルトラセン722〕とワックス〔（日本精蠟（株）製、商品名：Hi-Mic1080）、（サゾール公社製、商品名：サゾ

ールH1) ] とを、混練機を使用して170℃で、60～80分混練して、ホットメルト接着剤組成物を製造し、その物性を評価した。結果を第2表に示す。

#### 実施例4 (ホットメルト接着剤組成物の製造及び評価)

第3表に示す配合割合にて、実施例2で得られた共重合体水素添加物と、SBS (スチレン-ブタジエンスチレンブロック共重合体) [シェルジャパン (株) 製、商品名: クレイトンD-1102JS (スチレン/ゴム=30/70 (質量比)) とオイル [出光興産 (株) 製、商品名: PS-32] と酸化防止剤 [日本チバガイギー (株) 製、商品名: イルガノックス1010] とを、混練機ラボプラストミルを使用して140℃で、40分混練して、ホットメルト接着剤組成物を製造し、その物性を評価した。結果を第3表に示す。

#### 比較例1 (石油樹脂の製造)

高分子量体を500質量ppm含有するスチレンを使用した他は、実施例1と同様に共重合反応及び操作を行ない、346gの(ジ)シクロペンタジエンとスチレンの共重合体(石油樹脂)を得た。

この共重合体の性質を第1表に示す。

#### 比較例2 (水素添加石油樹脂の製造)

比較例1で得られた共重合体を使用した他は、実施例2と同様に水素化添加反応及び操作を行ない、71gの(ジ)シクロペンタジエンとスチレンの共重合体水素添加物(水素添加石油樹脂)を得た。

この共重合体水素添加物の性質を第1表に示す。

#### 比較例3 (ホットメルト接着剤組成物の製造及び評価)

比較例2で得られた共重合体水素添加物を使用した他は、実施例3と同様に操作を行い、ホットメルト接着剤組成物を製造し、その物性を評価した。結果を第2表に示す。

## 比較例 4 (ホットメルト接着剤組成物の製造及び評価)

比較例 2 で得られた共重合体水素添加物を使用した他は、実施例 4 と同様に操作を行い、ホットメルト接着剤組成物を製造し、その物性を評価した。結果を第 3 表に示す。

第 1 表

	実施例 1	実施例 2	比較例 1	比較例 2
	共重合体	水素添加物	共重合体	水素添加物
軟化点 (°C)	7 5	9 5	7 6	9 6
スチレン含有量 (質量%)	4 7	1 9	4 8	2 0
臭素価 (g/100g)	5 6	7	5 6	6
最大分子量 (GPC測定)	11500	12000	18500	19000

第 2 表

		実施例 3	比較例 3
配 合	EVA(ウルトラセン720)(質量部)	1 5	1 5
	EVA(ウルトラセン722)(質量部)	2 0	2 0
	実施例 2 水素添加物(質量部)	5 0	—
	比較例 2 水素添加物(質量部)	—	5 0
	ワックス(Hi-Mic3080)(質量部)	1 0	1 0
	ワックス(サゾールH1)(質量部)	5	5
性 能	曇り点 (°C)	1 1 4	1 2 0
	恒温クリープ [50°C] (分)	1 8 0	1 6 1
	熔融粘度 [180°C] (MPa・s)	1 2 6 0	1 3 1 0

第 3 表

		実施例 4	比較例 4
配 合	SBS (クレイトンD-1102JS) (質量部)	2 5	2 5
	実施例 2 水素添加物 (質量部)	6 0	—
	比較例 2 水素添加物 (質量部)	—	6 0
	オイル (PS-32) (質量部)	1 5	1 5
	酸化防止剤 (イルカ <sup>®</sup> ノックス1010) (質量部)	1	1
性 能	軟化点 (°C)	7 9	7 9
	熔融粘度 [180°C] (MPa・s)	7 4 7 0	7 6 0 0
	粘着力 [23°C] (N/cm)	8 . 1	7 . 1
	ループタック [23°C] (N/cm)	8 . 5	3 . 9
	保持力 [40°C] (mm&分) <sup>1)</sup>	1.0&60	0.9&60

1) 一定時間内のずれ幅による定量

第 2 表及び第 3 表から、実施例 3 及び 4 のホットメルト接着剤組成物は、比較例 3 及び 4 の組成物に比し、相溶性の指標である曇り点、耐熱性の指標である恒温クリープ、粘着力及びループタック等の粘着性能が優れている。

#### 産業上の利用可能性

本発明によれば、高分子量体が少なく、分子量分布の狭い石油樹脂及び水素添加石油樹脂が得られる。

又、本発明の水素添加石油樹脂を使用することにより得られるホットメルト接着剤組成物は、加熱時の流動性、熱安定性及び耐候性に優れるため、衛生材料用、包装用、製本用、繊維用、木工用、電気材料用、製缶用、建

築用、製袋用及び道路用バインダー等種々の分野で利用できる。

## 請 求 の 範 囲

1. シクロペンタジエン系化合物と、実質的に高分子量体を含まないビニル置換芳香族化合物を溶媒の存在下、共重合反応する石油樹脂の製造方法。
2. シクロペンタジエン系化合物と、実質的に高分子量体を含まないビニル置換芳香族化合物を溶媒の存在下共重合反応後、水素添加反応を行なう水素添加石油樹脂の製造方法。
3. 請求項2に記載の製造方法により得られた、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）で観測される最大分子量が18000以下の水素添加石油樹脂。
4. 請求項3に記載の水素添加石油樹脂を含有するホットメルト接着剤組成物。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/15335

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C08F232/06, 8/04, C09J145/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C08F232/06, 8/04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2002-88116 A (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd.), 27 March, 2002 (27.03.02), Claims; examples (Family: none)	1-4
X	JP 11-130820 A (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd.), 18 May, 1999 (18.05.99), Claims; examples & EP 845484 A2 & US 6040388 A1	1-4
X	JP 2-51502 A (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd.), 21 February, 1990 (21.02.90), Claims; examples (Family: none)	1-4

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
 "E" earlier document but published on or after the international filing date  
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
12 February, 2004 (12.02.04)

Date of mailing of the international search report  
24 February, 2004 (24.02.04)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/15335

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 8-208763 A (Hercules Inc.), 13 August, 1996 (13.08.96), Claims & US 5502140 A1 & EP 708121 A2	1-4
X	JP 5-194629 A (Tonex Co., Ltd.), 03 August, 1993 (03.08.93), Claims; examples (Family: none)	1-4
X	JP 5-504592 A (Exxon Chemical Patents Inc.), 15 July, 1993 (15.07.93), Claims; examples & WO 91/13106 A1	1-4

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08F232/06, 8/04, C09J145/00

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08F232/06, 8/04

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 2002-88116 A (出光石油化学株式会社) 2002. 03. 27, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-4
X	JP 11-130820 A (出光石油化学株式会社) 1999. 05. 18, 特許請求の範囲、実施例 & EP 845484 A2 & US 6040388 A1	1-4
X	JP 2-51502 A (出光石油化学株式会社) 1990. 02. 21, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-4
X	JP 8-208763 A (ハーキュリーズ・インコーポレーテッド) 1996. 08. 13, 特許請求の	1-4

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

12. 02. 2004

国際調査報告の発送日

24. 2. 2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

中島 庸子

4 J

8 4 1 6

電話番号 03-3581-1101 内線 3455

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	範囲 & US 5502140 A1 & EP 708121 A2	
X	JP 5-194629 A (トーネックス株式会社) 1993. 08. 03, 特許請求の 範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-4
X	JP 5-504592 A (エクソン・ケミカル・パテント・インク) 1993. 07. 15, 特許請求の範 囲、実施例 & WO 91/13106 A1	1-4